

E P • U S

P C T

## 国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条)  
[PCT18条、PCT規則43、44]

出願人又は代理人 の書類記号 00088	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220) 及び下記5を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP01/01012	国際出願日 (日.月.年) 14.02.01	優先日 (日.月.年) 28.02.00
出願人(氏名又は名称) 東レ株式会社		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。  
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 2 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

## 1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。

☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。

☐ この国際出願に含まれる書面による配列表

☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している(第II欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、

第 \_\_\_\_\_ 図とする。 ☐ 出願人が示したとおりである。

☒ なし

☐ 出願人は図を示さなかった。

☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> H01G4/20, C08J5/18

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> H01G4/00-4/40, C08J5/18

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2001年
日本国登録実用新案公報	1994-2001年
日本国実用新案登録公報	1996-2001年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP, 5-124100, A (東レ株式会社), 21. 5月. 1993 (21. 05. 93) (ファミリーなし)	1-10

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

08. 05. 01

国際調査報告の発送日

15.05.01

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

竹井 文雄

5R

7922

電話番号 03-3581-1101 内線 3563

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2001年9月7日 (07.09.2001)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 01/65575 A1

- (51) 国際特許分類<sup>7</sup>: H01G 4/20, C08J 5/18 津市瀬田5丁目33-9 Shiga (JP). 朝倉正芳 (ASAKURA, Masayoshi) [JP/JP]; 〒525-0052 滋賀県草津市西矢倉3丁目16-14 Shiga (JP). 山形哲也 (YAMAGATA, Tetsuya) [JP/JP]; 〒411-0033 静岡県三島市文教町2-26-33 東レ上岩崎アパート3棟14号室 Shizuoka (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP01/01012
- (22) 国際出願日: 2001年2月14日 (14.02.2001)
- (25) 国際出願の言語: 日本語 (74) 代理人: 岩見知典 (IWAMI, Tomonori); 〒279-8555 千葉県浦安市美浜1丁目8番1号 東レ株式会社 知的財産部内 Chiba (JP).
- (26) 国際公開の言語: 日本語 (81) 指定国 (国内): CN, ID, KR, US.
- (30) 優先権データ: 特願2000-50811 2000年2月28日 (28.02.2000) JP (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 東レ株式会社 (TORAY INDUSTRIES, INC.) [JP/JP]; 〒103-8666 東京都中央区日本橋室町2丁目2番1号 Tokyo (JP). 添付公開書類:  
— 国際調査報告書
- (72) 発明者; および 2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 恒川哲也 (TSUNEKAWA, Tetsuya) [JP/JP]; 〒520-2134 滋賀県大

(54) Title: POLYESTER FILM FOR HEAT-RESISTANT CAPACITOR, METALLIZED FILM THEREOF, AND HEAT-RESISTANT FILM CAPACITOR CONTAINING THE SAME

(54) 発明の名称: 耐熱性コンデンサー用ポリエステルフィルム、その金属化フィルムおよびそれを用いた耐熱性フィルムコンデンサー

(57) Abstract: A polyester film for heat-resistant capacitors which is a biaxially oriented film consisting mainly of a polyester (A), contains a polyimide (B) therein, and has a glass transition temperature of 105 to 145°C and a machine-direction elongation at breakage of 70 to 150%. The film has such a high glass transition temperature and is excellent in insulation volume resistance and dielectric breakdown voltage at high temperatures. This film is useful for obtaining an excellent metallized film for heat-resistant capacitors and for obtaining an excellent heat-resistant film capacitor.

(57) 要約:

ポリエステル (A) を主成分とする二軸配向フィルムであって、このフィルム中にポリイミド (B) を含有し、ガラス転移温度が105℃以上、145℃以下であり、フィルムの長手方向の破断伸度が70%以上、150%以下である耐熱コンデンサー用ポリエステルフィルムは、ガラス転移温度が高く、高温下での絶縁体積抵抗、絶縁破壊電圧に優れ、また、これを用いて優れた耐熱性コンデンサー用金属化フィルムおよび耐熱性フィルムコンデンサーを得ることができる。

WO 01/65575 A1

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

1  
明 細 書

耐熱性コンデンサー用ポリエステルフィルム、その金属化フィルムおよびそれを用いた耐熱性フィルムコンデンサー

#### 技術分野

本発明は、耐熱性コンデンサー用に好適なポリエステルフィルムに関するものであり、さらに詳しくは、高温下でも絶縁体積抵抗かつ絶縁破壊電圧に優れた耐熱性コンデンサー用ポリエステルフィルム、その金属化フィルムおよびこのようなフィルムを用いた高温下での荷電寿命に優れた耐熱性フィルムコンデンサーに関するものである。

#### 背景技術

従来、二軸配向ポリエステルフィルムを誘電層とし、その表面に金属蒸着層を電極として形成させたコンデンサーはこれまでも広く用いられている。また、近年、コンデンサーとしての使用温度範囲を広くするために、主成分とするポリエステルに異種のポリエステルまたはポリカーボネートをブレンドし、使用温度範囲を高温側まで高めるといった技術的開示もなされている。例えば、特公平7-21070号公報には、多種のポリエステルのブレンド物からなるフィルムを使用した、耐熱性に優れたコンデンサー用フィルムが開示されている。

また、ポリエステルフィルムをコンデンサーの誘電体として用いる場合、通常、コンパクトな形状とするため、金属箔とともに巻き取ったり、ポリエステルフィルムの表面に予め金属層を設けた金属化フィルムにして巻き取ったり、あるいは積層することによって素子を作成した後、プレス、電極加工、樹脂包埋やケース収納することが行われ、電気特性（主に静電容量）の安定化のため一定温度で熱処理するのが一般的である。

このようにポリエステルフィルムをコンデンサーの誘電体として用いた場合、コンデンサーの完成に至るまでにポリエステルフィルムは、様々の熱的なストレスや機械的なストレスを受ける。その結果、完成したコンデンサーは、本来ポリ

エステルフィルムの素材として持っている絶縁抵抗や絶縁破壊電圧等から期待されるコンデンサー特性よりも低下したものができてしまうことがあった。また、ポリエステルフィルムそのものの性能が劣っていれば、コンデンサー特性が低下することは言うまでもない。また、作成されたコンデンサーが実際に機器に組み込まれ、使用環境下で使用中に機能低下や破壊があった場合（荷電寿命が劣る）は、機器の安全性の点から大きな問題となる。

このような課題に対し、従来からフィルム強度、伸度、表面粗さあるいはコンデンサー加工時のプレス条件、熱処理条件など検討し、改善が試みられている。例えば、特開昭53-64753号公報には、縦方向の強度とフィルム表面の突起数を規定した優れたコンデンサー用ポリエステルフィルムが開示されている。

しかしながら、従来のポリエステルフィルムは、ガラス転移温度が100℃付近にあり、そのポリエステルフィルムを誘電体として用いたコンデンサーの場合、90℃以上の温度条件下では、絶縁破壊電圧の低下が大きく、コンデンサーの破壊が起こり易くなるため、その使用温度範囲が90℃以下に制限されるというフィルムの基本的性能に欠点があった。また、前記従来技術で示したポリエステル同志のブレンド物によるフィルムは耐熱性の向上は認められるが、エステル交換反応により結晶性が低下して寸法安定性が低下したり、また製膜安定性に欠けるという問題があり、実用化が難しく、また絶縁破壊電圧等の特性が劣るものである。

本発明は、かかる従来のポリエステルフィルムの欠点を改良するものであり、90℃以上の高温条件下でも優れた電気特性（絶縁体積抵抗、絶縁破壊電圧等）を有する耐熱性コンデンサー用ポリエステルフィルム、その金属化フィルムおよびそのフィルムを用いた高温下での荷電寿命に優れた耐熱性フィルムコンデンサーを提供することを目的とするものである。

#### 発明の開示

本発明は、上記課題を解決すべく鋭意検討し、見出されたものであり、本発明の耐熱性コンデンサー用ポリエステルフィルムは、ポリエステル（A）とポリイミド（B）を含有する二軸配向ポリエステルフィルムであって、該二軸配



3

向フィルムのガラス転移温度が $105^{\circ}\text{C}$ 以上、 $145^{\circ}\text{C}$ 以下であり、該フィルムの長手方向の破断伸度が $70\%$ 以上、 $150\%$ 以下であることを特徴とする耐熱性コンデンサー用ポリエステルフィルムを骨子とする。

また、本発明の耐熱性コンデンサー用ポリエステルフィルムは、表面粗さ ( $R_a$ ) が $10\text{ nm}$ 以上、 $140\text{ nm}$ 以下であること、ポリエステル (A) がエチレンテレフタレートを主成分とするポリエステルであること、ポリイミド (B) がポリエーテルイミドであること、二軸配向ポリエステルフィルムの誘電損失 ( $\tan \delta$ ) の立ち上がり温度が $85^{\circ}\text{C}$ 以上、 $120^{\circ}\text{C}$ 以下であること、二軸配向ポリエステルフィルムの $125^{\circ}\text{C}$ における絶縁体積抵抗 ( $I R$ ) が $1.0 \times 10^{14} \Omega \cdot \text{cm}$ 以上、 $5.0 \times 10^{16} \Omega \cdot \text{cm}$ 以下であること、ポリイミド (B) の含有率が二軸配向ポリエステルフィルムの全重量の $5 \sim 30$ 重量%であること、および $150^{\circ}\text{C}$ 、 $30$ 分における二軸配向ポリエステルフィルムの長手方向の熱収縮率が $2.5\%$ 以下であることを好ましい態様として含んでいる。

また、本発明の耐熱性コンデンサー用金属化フィルムは、上記耐熱性コンデンサー用ポリエステルフィルムの少なくとも片面に、蒸着等による金属層を形成させたものであり、さらに本発明の耐熱性フィルムコンデンサーは、かかる耐熱性コンデンサー用金属化フィルムを用いて構成される。

#### 発明を実施するための最良の形態

本発明の耐熱性コンデンサー用ポリエステルフィルムは、ポリエステル (A) とポリイミド (B) で構成される。

本発明の耐熱性コンデンサー用ポリエステルフィルムを構成するポリエステル (A) とは、芳香族ジカルボン酸、脂環族ジカルボン酸または脂肪族ジカルボン酸とジオールを主たる構成成分とするポリエステルである。芳香族ジカルボン酸成分としては、例えば、テレフタル酸、イソフタル酸、フタル酸、 $1,4$ -ナフタレンジカルボン酸、 $1,5$ -ナフタレンジカルボン酸、 $2,6$ -ナフタレンジカルボン酸、ベンゾフェノンジカルボン酸、 $4,4'$ -ジフェニルジカルボン酸、 $3,3'$ -ジフェニルジカルボン酸、 $4,4'$ -ジフェニルエーテルジカルボン酸、 $4,4'$ -ジフェニルスルホンジカルボン酸等を用いることができ、なかでも好ま

しくは、テレフタル酸、2, 6-<sup>4</sup>ナフタレンジカルボン酸を用いることができる。脂環族ジカルボン酸成分としては、例えば、ヘキサヒドロテレフタル酸、1, 3-アダマンタンジカルボン酸、シクロヘキサンジカルボン酸等を用いることができる。脂肪族ジカルボン酸成分としては、例えば、アジピン酸、コハク酸、アゼライン酸、スベリン酸、セバシン酸、ドデカンジオン酸等を用いることができる。これらの酸成分は1種のみ用いてもよく、2種以上併用してもよく、さらには、ヒドロキシエトキシ安息香酸等のオキシ酸等を一部共重合してもよい。また、ジオール成分としては、例えば、クロルハイドロキノン、メチルハイドロキノン、4, 4'-ジヒドロキシビフェニル、4, 4'-ジヒドロキシジフェニルスルホン、4, 4'-ジヒドロキシジフェニルスルフィド、4, 4'-ジヒドロキシベンゾフェノン、p-キシレングリコールなどの芳香族ジオール、エチレングリコール、1, 2-プロパンジオール、1, 3-プロパンジオール、ネオペンチルグリコール、1, 3-ブタンジオール、1, 4-ブタンジオール、1, 5-ペンタンジオール、1, 6-ヘキサンジオール、1, 2-シクロヘキサンジメタノール、1, 3-シクロヘキサンジメタノール、1, 4-シクロヘキサンジメタノール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ポリアルキレングリコール、2, 2'-ビス(4'-β-ヒドロキシエトキシフェニル)プロパン等を用いることができ、なかでも好ましくは、エチレングリコール、1, 4-ブタンジオール、1, 4-シクロヘキサンジメタノール、ジエチレングリコールを用いることができ、特に好ましくは、エチレングリコール等を用いることができる。これらのジオール成分は1種のみ用いてもよく、2種以上併用してもよい。また、本発明のポリエステルにはトリメリット酸、ピロメリット酸、グリセロール、ペンタエリスリトール、2, 4-ジオキシ安息香酸、ラウリルアルコール、イソシアン酸フェニル等の多単官能化合物等の他の化合物を、ポリマーが実質的に線状である範囲内で共重合されていてもよい。グリコール成分以外に、p-ヒドロキシ安息香酸、m-ヒドロキシ安息香酸、2, 6-ヒドロキシナフトエ酸などの芳香族ヒドロキシカルボン酸およびp-アミノフェノール、p-アミノ安息香酸などを本発明の目的を損なわない程度の少量であればさらに共重合せしめることができる。

本発明では、エチレンテレフタレート単位、またはエチレン-2,6-ナフタレート<sup>5</sup>を主成分とするポリエステルが本発明の効果を奏する観点から好ましく、エチレンテレフタレート単位を主成分とするポリエステル、例えば、ポリエチレンテレフタレート（PET）およびポリエチレンテレフタレート<sup>5</sup>を主成分とする共重合体および変成体が本発明の効果発現の観点から特に好ましく用いられる。ここで、エチレンテレフタレート単位を主成分とするポリエステルとは、エチレンテレフタレート単位を少なくとも70モル%以上含有するポリエステルである。ここで、酸成分として、テレフタル酸以外の少量の他の酸成分を共重合しても良い。またエチレングリコール以外の他のグリコール成分を共重合成分として加えても良い。テレフタル酸以外の酸成分としては、イソフタル酸、ナフタレンジカルボン酸、アジピン酸、セバチン酸などが挙げられる。また、エチレングリコール以外のグリコール成分としては、トリメチレングリコール、ジエチレングリコール、テトラメチレングリコール、シクロヘキサンジメタノールなどが好ましく例示される。本発明で用いられるポリエステル（A）の原料の固有粘度は、配合されるポリイミド（B）との溶融混練性、製膜性、溶融熱安定性の観点から、好ましくは0.55～2.0 dl/g、より好ましくは0.6～1.4 dl/g、最も好ましくは0.65～1.0 dl/gである。

本発明でいうポリイミド（B）とは、環状イミド基を含有する溶融成形性のポリマーであり、本発明の目的に使用できるものであれば特に限定されないが、脂肪族、脂環族または芳香族系のエーテル単位と環状イミド基を繰り返し単位として含有するポリエーテルイミドがより好ましい。例えば、米国特許第4141927号明細書、特許第2622678号、特許第2606912号、特許第2606914号、特許第2596565号、特許第2596566号、特許第2598478号各公報に記載のポリエーテルイミド、特許第2598536号、特許第2599171号各公報、特開平9-48852公報、特許第2565556号、特許第2564636号、特許第2564637号、特許第2563548号、特許第2563547号、特許第2558341号、特許第2558339号、特許第2834580号各公報に記載のポリマー等が挙げられる。

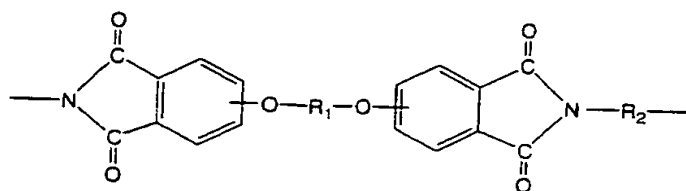
また、本発明の効果を阻害しない範囲であれば、ポリイミド（B）の主鎖に環

6

状イミド、エーテル単位以外の構造単位、例えば、芳香族、脂肪族、脂環族エステル単位、オキシカルボニル単位等が含有されていても良い。

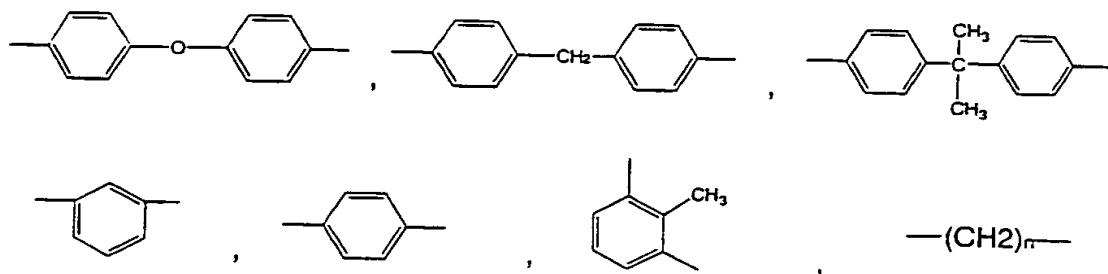
また、本発明の効果を阻害しない範囲であれば、ポリエーテルイミドの主鎖に環状イミド、エーテル単位以外の構造単位、例えば、芳香族、脂肪族、脂環族エステル単位、オキシカルボニル単位等が含有されていても良い。

本発明で好ましく使用できるポリエーテルイミドの具体例としては、下記一般式で示されるポリマーを例示することができる。



(ただし、上記式中  $R_1$  は、6～30個の炭素原子を有する2価の芳香族または脂肪族残基； $R_2$  は6～30個の炭素原子を有する2価の芳香族残基、2～20個の炭素原子を有するアルキレン基、2～20個の炭素原子を有するシクロアルキレン基、及び2～8個の炭素原子を有するアルキレン基で連鎖停止されたポリオルガノシロキサン基からなる群より選択された2価の有機基である。)

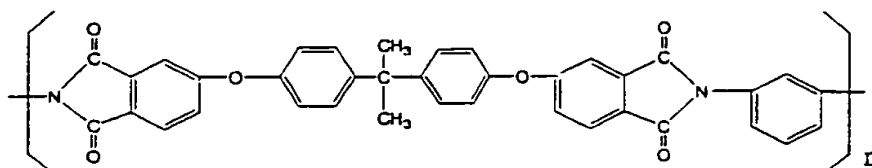
上記  $R_1$ 、 $R_2$  としては、例えば、下記式群に示される芳香族残基を挙げることができる。



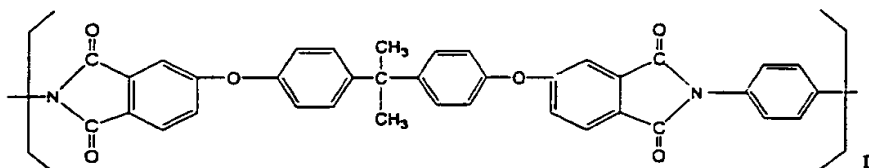
本発明では、ポリエステル(A)との相溶性、コスト、熔融成形性等の観点か

7

ら、下記式で示される構造単位を有する、2, 2-ビス[4-(2, 3-ジカルボキシフェノキシ)フェニル]プロパン二無水物とm-フェニレンジアミン、またはp-フェニレンジアミンとの縮合物が好ましい。このポリエーテルイミドは、“ウルテム”（登録商標）の商標名で、ジーイープラスチックス社より入手可能である。



または



本発明では、ポリエステル（A）との相溶性、コスト、溶融成形性の観点から、ガラス転移温度が好ましくは350℃以下、より好ましくは250℃以下のポリエーテルイミドが好ましく、2, 2-ビス[4-(2, 3-ジカルボキシフェノキシ)フェニル]プロパン二無水物とm-フェニレンジアミンまたはp-フェニレンジアミンとの縮合物が、ポリエステル（A）との相溶性、コスト、溶融成形性等の観点から最も好ましい。このポリエーテルイミドは、ジーイープラスチックス社製であり、「U l t e m 1 0 0 0 または 5 0 0 0 シリーズ」の商標名で知られているものである。

本発明のポリエステルフィルムは、ポリエステル（A）とポリイミドを含有する二軸配向ポリエステルフィルムである。二軸配向の度合いは、ポリエステル（A）とポリイミドを含有する未延伸フィルムを長手方向及び幅方向に1段階あるいは2段階以上に延伸することにより適宜、変更可能である。

本発明においては、二軸配向ポリエステルフィルムのガラス転移温度が105

℃以上、145℃以下であることが本発明の目的を達成する上で必須である。ガラス転移温度が105℃未満であると、本発明で目的とする、フィルムコンデンサーの高温下での良い荷電寿命が得られなくなり、また、これとは逆にガラス転移温度が145℃を超えると、製膜性が悪化し、フィルム破れが多発したり、フィルムの高温下での絶縁破壊電圧が小さくなるからである。本発明の二軸配向ポリエステルフィルムのガラス転移温度は、製膜性、高温下での荷電寿命性の観点から、115℃以上、140℃以下がより好ましく、120℃以上、135℃以下が最も好ましい。

本発明においては、二軸配向ポリエステルフィルムの長手方向の破断伸度が70%以上、150%以下であることが必須である。長手方向の破断強度は、好ましくは80%以上、150%以下、より好ましくは90%以上、140%以下、さらに好ましくは100%以上、130%以下である。長手方向の破断伸度が本発明の範囲以外では、絶縁破壊電圧が低下するのみでなく、荷電寿命が低下し、本発明で目的とする効果が得られなくなる。また、蒸着等でフィルム表面を金属化加工するとき、あるいはコンデンサーとするために金属化フィルムを積層するときなどに、フィルムの切断・破損あるいはフィルム伸び等のトラブルが生じ易いので好ましくない。

本発明の二軸配向ポリエステルフィルムの表面粗さ(Ra)は、10nm以上、140nm以下であることが、本発明のポリエステルフィルムの持つ優れた特性を保って、高温下での荷電寿命に優れた耐熱性フィルムコンデンサーを得ると言う本発明の目的を達成する上で好ましい。表面粗さが10nm未満では、コンデンサーの誘電体としたポリエステルフィルムの部分劣化が促進しやすくなり、荷電寿命が劣りやすくなる。また、表面粗さが140nmを超える場合は、作成したコンデンサーの絶縁破壊電圧が低下しやすくなり、性能の良いコンデンサーが得られにくくなる。本発明の二軸配向ポリエステルフィルムの表面粗さは、20nm以上、120nm以下がより好ましく、30nm以上、100nm以下がさらに好ましく、35nm以上、85nm以下が最も好ましい。

本発明のポリエステルフィルムの10点平均粗さ(Rt)は、フィルムの滑り性ならびに生産性、コンデンサー加工性の観点から、900nm以上、2000

nm以下が好ましく、1200nm以上、1800nm以下がさらに好ましい。  
また、50 $\mu$ m以上の粗大粒子は、絶縁欠陥による性能低下の観点から、15個/m<sup>2</sup>以下にしておくことが好ましく、5個/m<sup>2</sup>以下がさらに好ましい。

本発明では、高温下での絶縁体積抵抗、絶縁破壊電圧などの電気特性、荷電寿命の観点から、二軸配向ポリエステルフィルム中における前記ポリイミド(B)の含有量は5～30重量%であることが好ましく、より好ましくは8～25重量%、さらに好ましくは10～20重量%である。ポリエステル(A)とポリイミド(B)を押出機にて混練して互いに相溶させ、ポリエステル(A)の電気特性を改良するには、ポリイミド(B)の含有量は5重量%以上とすることが好ましい。また、溶融押出工程で得られたフィルムに対して二軸延伸および熱処理を施して、フィルムに配向を付与し、コンデンサーとした場合の高温下での荷電寿命を高める観点から、ポリイミド(B)の含有量は30重量%以下とすることが好ましい。

本発明の二軸配向ポリエステルフィルムの誘電損失(tan $\delta$ )の立ち上がり温度は、85℃以上、120℃以下であることが好ましく、より好ましくは90℃、110℃以下、さらに好ましくは95℃以上、100℃以下である。誘電損失(tan $\delta$ )の立ち上がり温度が85℃未満では、高い使用環境温度での荷電寿命が低下する傾向がある。また、誘電損失(tan $\delta$ )の立ち上がり温度が120℃を超える場合は、誘電体としてのポリエステルフィルムの絶縁破壊電圧の低下が起こり易くなり、結果的に高い使用環境温度での荷電寿命が劣る傾向がある。

また、本発明の二軸配向ポリエステルフィルムの125℃における絶縁体積抵抗(IR)は、 $1.0 \times 10^{14} \Omega \cdot \text{cm}$ 以上、 $5.0 \times 10^{16} \Omega \cdot \text{cm}$ 以下であることが好ましく、より好ましくは $5.0 \times 10^{14} \Omega \cdot \text{cm}$ 以上、 $1.0 \times 10^{16} \Omega \cdot \text{cm}$ 以下、さらに好ましくは $8.0 \times 10^{14} \Omega \cdot \text{cm}$ 以上、 $8.0 \times 10^{15} \Omega \cdot \text{cm}$ 以下である。本発明の二軸配向ポリエステルフィルムを誘電体として用いたフィルムコンデンサーの高い使用環境温度での絶縁破壊電圧を改良するには、 $1.0 \times 10^{14} \Omega \cdot \text{cm}$ 未満では困難なことがあるので注意が必要である。また、125℃における絶縁抵抗が $5.0 \times 10^{16} \Omega \cdot \text{cm}$ を超える場合は、製

膜性が劣り易く、また高い使用環境温度での荷電寿命が劣る傾向がある。

本発明においては、二軸配向ポリエステルフィルムの150℃、30分における長手方向の熱収縮率が2.5%以下であることが好ましく、より好ましくは2.0%以下、さらに好ましくは1.5%以下である。150℃の熱収縮率が2.5%を超えると、金属を蒸着する工程で熱収縮が大きくなりシワが発生して歩留まりが低下したり、コンデンサーとして使用した際の電気特性が悪化する傾向があるので注意すべきである。

本発明の二軸配向ポリエステルフィルムの固有粘度（IV）は、0.56 dl/g以上、1.5 dl/g以下であることがフィルムの表面欠点、フィルム中の粗大粒子の低減、フィルムの熱収縮率の低減ならびに製膜性の観点から好ましい。より好ましいフィルムの固有粘度は、0.61～0.8 dl/gの範囲であり、さらに好ましくは0.62～0.70 dl/gの範囲である。固有粘度が0.55 dl/g未満のフィルムは製膜時にフィルム破れが起こり易く、安定に製膜することが困難である。固有粘度が1.5 dl/gを超える場合はフィルムの熱収縮率が大きくなり易い。

本発明のフィルムの厚み方向の屈折率は、本発明の効果発現の観点から、1.470以上、1.540以下が好ましい。より好ましい厚み方向の屈折率は、1.490～1.540であり、さらに好ましくは1.490～1.530である。

本発明の二軸配向フィルムの長手方向のヤング率（YMD）と幅方向のヤング率（YTD）の和（YMD+YTD）は、8～15 GPaの範囲であることが好ましく、より好ましくは9～13 GPa、最も好ましくは10～12 GPaである。ヤング率の和が8 GPa未満では、本発明のフィルムの破断伸度が大きくなりやすいばかりか、絶縁破壊電圧などの電気特性が劣り易い。また、ヤング率の和が15 GPaを超える場合は、フィルムの熱収縮率が大きく、またフィルムが引き裂け易くなる。

本発明の耐熱性コンデンサー用ポリエステルフィルムの表面粗さを変更するには、エチレンテレフタレート単位を主成分するポリエステルとポリイミドを含有する樹脂に無機粒子や有機粒子などを添加することが好ましい。これらの添加粒子の粒径、配合量、形状などは、目的とする表面粗さに応じて適宜選択すること



が可能である。ちなみに、平均粒子径としては $0.05\mu\text{m}$ 以上、 $3\mu\text{m}$ 以下が好ましく、添加量としては $0.01$ 重量%以上、 $3$ 重量%以下が好ましい。また、使用する添加粒子は、平均粒子径を $1$ 種類としても良いが、平均粒子径の異なる $2$ 種類以上を組み合わせる添加することがさらに好ましい。

無機粒子の具体例として、酸化ケイ素、酸化アルミニウム、酸化チタンなどの酸化物、カオリン、タルク、モンモリナイトなどの複合酸化物、炭酸カルシウム、炭酸バリウムなどの炭酸塩、硫酸カルシウム、硫酸バリウムなどの硫酸塩、チタン酸バリウム、チタン酸カリウムなどのチタン酸塩、リン酸カルシウムなどのリン酸塩などが用いることができる。これらに限定されるわけでない。酸化ケイ素は真球状でも多孔質であっても良い。

また、有機粒子の具体例としては、ポリスチレンもしくは架橋ポリスチレン粒子、スチレン・アクリル系及びアクリル系架橋粒子、スチレン・メタクリル系架橋粒子などのビニル系粒子、ベンゾグアナミン・ホルムアルデヒド、シリコン、ポリテトラフルオロエチレンなどの粒子を用いることができるが、これらに限定されるものでなく、粒子を構成する部分のうち少なくとも一部がポリエステルに対し不溶の有機高分子微粒子であれば如何なる粒子でも良い。

本発明の耐熱性コンデンサー用ポリエステルフィルムには、フィルム表面の突起形成のための上記無機粒子や有機粒子以外に、その他の各種添加剤、例えば、酸化防止剤、熱安定剤および結晶核剤などを本発明の効果が損なわれない程度の少量であれば添加することができる。

本発明の誘電体を構成する二軸配向ポリエステルフィルムの厚さは、特に限定されないが、 $0.5\mu\text{m}$ ～ $15\mu\text{m}$ の範囲にあることが好ましい。本発明で開示するフィルムが特に有効に使用できる、巻回型の耐熱性フィルムコンデンサー用途では $1.5\sim 10\mu\text{m}$ 、チップ状耐熱性フィルム積層コンデンサー用途では $0.5\sim 3\mu\text{m}$ が特に好ましい。

巻回型またはチップ状型等の本発明の耐熱性フィルムコンデンサーは、公知の方法で製造することができる。導電体は、金属を箔状体にした金属箔または上記の誘電体（耐熱性コンデンサー用ポリエステルフィルム）に金属を真空蒸着、スパッタリング法等の方法で形成せしめた金属薄膜のいずれであっても良い。

導電体を構成する金属としては、アルミニウム、亜鉛、錫、チタン、ニッケル、或いはそれらの合金などが挙げられるが、これらに限定されることはない。また、本発明のコンデンサーの形状は問わないが、通常のリード線を有するタイプ、あるいはリード線を有さず、基板表面に直接ハンダ付けするタイプ（いわゆるチップコンデンサー）のいずれであっても良い。また、本発明のコンデンサーは交流および直流のいずれの用途にも展開可能であり、長期耐用性が必要となる自動車、インバーター照明、通信機器分野の各種コンデンサーとして活用できる。

次いで、ポリエステル（A）としてポリエチレンテレフタレート（PET）を用い、ポリイミド（B）としてジーイープラスチックス社製”ウルテム”を使用した場合を例示して、本発明の耐熱性コンデンサー用ポリエステルフィルムの好ましい製造法について説明するが、本発明は、下記の製造法に限定されないことは無論である。

まず、テレフタル酸を主成分とするカルボン酸またはそのアルキルエステルとエチレングリコールを主成分とするグリコールを、カルシウム、マグネシウム、リチウム、マンガン元素などの金属触媒化合物の存在下、130～260℃でエステル化あるいはエステル交換反応を行なう。その後、アンチモン、ゲルマニウム、チタン元素からなる触媒化合物およびリン化合物を添加して、高真空下、温度220～300℃で重縮合反応させる。上記リン化合物の種類としては、亜リン酸、リン酸、リン酸トリエステル、ホスホン酸、ホスホネート等があるが、特に限定されず、またこれらのリン化合物を二種以上併用しても良い。上記触媒化合物の添加量は特に限定しないが、カルシウム、マグネシウム、リチウム、マンガン等の触媒金属化合物とリン化合物の比が下記の式を満足するように含むことがフィルムの絶縁体積抵抗を高める上で好ましい。

$$0.3 \leq (M/P) \leq 1.8$$

（ここで、Mはフィルム中のカルシウム、マグネシウム、リチウム、マンガン等、触媒金属元素の全モル数であり、Pはフィルム中のリン元素のモル数である。）

また、エステル化あるいはエステル交換から重縮合の任意の段階で必要に応じて酸化防止剤、熱安定剤、滑剤、紫外線吸収剤、核生成剤、表面突起形成用無機および有機粒子を添加する。

本発明では、誘電損失の立ち上がり温度の改良および絶縁破壊電圧の観点から、ポリエステル（A）をポリイミド（B）と共に二軸混練押出機に投入し、ポリエステル（A）／ポリイミド（B）の重量分率が40／60～60／40であるブレンド原料を予め作成し、該ブレンド原料を、ポリエステル（A）および必要に応じてこれらの回収原料と共に押出機に投入して、ポリイミド（B）の重量分率を下げて、目的とする組成のフィルムを製膜することが好ましい。このように、ポリイミド（B）を高濃度に添加したブレンド原料を予め作成して、その後、ポリエステル（A）で希釈して使用すると、フィルム中のポリイミド（B）樹脂をPETと相溶化（ポリマーの分散ドメインサイズが約10 nm以下）させることができ、コスト的にも優れる、高品質のコンデンサー用二軸配向ポリエステルフィルムが得られ易くなるからである。

上記の好ましい製造法の具体的な条件は以下のとおりである。

まず、PETのペレット（A）と“ウルテム”1010のペレット（B）を、一定の割合で混合して、270～300℃に加熱されたベント式の2軸混練押出機に供給し、熔融混練してブレンドチップを得る。このときのベント式二軸押出機は、PETによる“ウルテム”の可塑化混合、“ウルテム”の均一微分散を経て、PETと“ウルテム”のナノオーダー混合を行うには、2穴ベント式3段押出型のスクリーを装備したものが好ましく、そのときの剪断速度は100～300 sec<sup>-1</sup>、滞留時間は3～10分の範囲が好ましい。

その後、上記ペレタイズ作業により得られたPETと“ウルテム”1010からなるブレンドチップ、希釈用PETチップ、および必要に応じて製膜後の回収原料を、“ウルテム”1010成分が所定の含有量（重量%）となるように適量配合し、180℃で3時間以上真空乾燥する。その後、これらを押出機に投入し、270～320℃にて熔融押出し、フィルター内を通過させた後、Tダイよりシート状に吐出し、このシート状物を表面温度20～70℃の冷却ドラム上に密着させて冷却固化し、実質的に無配向状態の未延伸ポリエステルフィルムを得る。

次に、この未延伸ポリエステルフィルムを二軸延伸し、配向せしめる。延伸の方法としては、逐次二軸延伸または同時二軸延伸法を用いることができる。

二軸延伸の条件は特に限定されず、フィルムの長手方向および幅方向に一段階

もしくは二段階以上の多段階で3.0～6.0の倍率で延伸することができる。延伸温度は90～180℃の範囲であれば良く、未延伸ポリエステルフィルムのガラス転移温度( $T_g$ )～( $T_g + 40$ )℃の範囲で長手方向及び幅方向に二軸延伸を行なうことが好ましい。さらに必要に応じて再延伸を行なっても良い。延伸の方式、温度にもよるが、フィルムの破断伸度を本発明で開示する特定の範囲にし、本発明のフィルムを得る観点から、延伸倍率は、長手方向、幅方向共に3～4倍程度に設定するのが好ましい。4倍以上延伸する場合には、配向を高めすぎないように注意すべきである。また、延伸後の熱処理は、温度210℃以上、ポリエステル(A)の融点以下の温度、好ましくは210～245℃で1～30秒間熱処理することが好ましい。さらに、熱処理時あるいは／または熱処理後フィルムを冷却する段階で幅方向あるいは／または長手方向に1～9%の弛緩処理を加えることが本発明の耐熱性コンデンサー用ポリエステルフィルムを得る上で有効である。本発明では、製膜したフィルムを50～120℃の温度条件下で5分～500時間、エージング処理することも好ましく行うことができる。

次に、本発明にかかる耐熱性フィルムコンデンサーの製造方法について説明する。

上記の如くして得られた耐熱性コンデンサー用ポリエステルフィルムを誘電体とし、金属箔または金属薄膜を導電体として、耐熱性コンデンサー用金属化フィルムを作成し、これを平板または円筒状に巻き回してコンデンサー素子を作るが、金属薄膜を導電体とした金属化フィルムを用いた方が本発明の効果が得られ易いので好ましい。この場合、金属薄膜形成法としては、周知の蒸着法、スパッタリング法等を用いることができ、特に誘電体ポリエステルフィルム厚みが0.8～8 $\mu\text{m}$ 、蒸着膜厚が50～200オングストローム、あるいは金属膜の表面抵抗値が0.5～5 $\Omega/\text{cm}$ の蒸着金属化フィルムを用いてコンデンサーにすることが、本発明の効果をj得る上で好ましい。

次いで、このようにして得られたコンデンサー素子を、常法に従って、プレス、端面封止およびリード線取り付け、必要に応じて電圧処理、熱処理等を行なってコンデンサーとする。ここで、素子作成時のプレスは、温度を120～180℃、プレス圧を20～100 $\text{kg}/\text{cm}^2$ の条件下で、1～30分処理することが、

部分損傷による荷電寿命低下を抑制する観点から好ましい。より好ましいプレス条件は、120～145℃、プレス圧20～60 kg/cm<sup>2</sup>、処理時間1～8分である。

本発明では、上記耐熱性コンデンサー用ポリエステルフィルムに公知のコロナ放電処理を施してもよいし、接着性、ヒートシール性、耐湿性、滑性および表面平滑性等を付与する目的で多種ポリマーを積層した構成や、有機または／および無機組成物で被覆した構成で使用しても良い。また、本発明のコンデンサーに絶縁油等を含浸せしめて、いわゆる油浸コンデンサーとして用いても良い。

[物性の測定方法ならびに効果の評価方法]

特性値の測定方法ならびに効果の評価方法は、次のとおりである。

#### (1) 固有粘度

オルトクロロフェノール中、25℃で測定した溶液粘度から、下式で計算した値を用いた。すなわち、

$$\eta_{sp}/C = [\eta] + K[\eta]^2 \cdot C$$

ここで、 $\eta_{sp} = (\text{溶液粘度} / \text{溶媒粘度}) - 1$ であり、Cは、溶媒100mlあたりの溶解ポリマ重量 (g/100ml、通常1.2)、Kはハギンス定数(0.343とする)である。また、溶液粘度、溶媒粘度はオストワルド粘度計を用いて測定した。単位は [dl/g] で示す。

#### (2) ガラス転移温度

疑似等温法にて下記装置および条件で比熱測定を行ない、JIS K7121に従って決定した。

装置 : T A Instrument 社製温度変調DSC

測定条件 :

加熱温度 : 270～570 K (RCS冷却法)

温度校正 : 高純度インジウムおよびスズの融点

温度変調振幅 : ±1 K

温度変調周期 : 60 秒

昇温ステップ : 5 K

試料重量 : 5 mg

試料容器 : アルミニウム製開放型容器 (22 mg)

参照容器 : アルミニウム製開放型容器 (18 mg)。

(3) 表面粗さ ( $R_a$ 、 $R_t$ )

(株) 小坂研究所製高精度薄膜段差計 ET-10 を用いて測定し、JIS-B-0601 に準じて中心線平均表面粗さ ( $R_a$ 、 $R_t$ ) を求めた。触針先端半径 0.5  $\mu$ m、針圧 5 mg、測定長 1 mm、カットオフ 0.08 mm とした。

(4) 誘電損失 ( $\tan \delta$ ) の立ち上がり温度

フィルムの両面に金属蒸着を施した金属化フィルムについて、周波数 60 Hz で温度特性を測定し、 $\tan \delta$  の立ち上がり勾配の外挿線と常温からの昇温過程のベース線との交点の温度を立ち上がり温度とした。

測定装置 : TA インスツルメント社製 2970 型誘電率分析装置 (DEA)

測定面積 : 254.38 mm<sup>2</sup>

電極押さえ圧 : 200 N

温度上昇速度 : 2℃/min

(5) 絶縁抵抗 ( $I_R$ )

JIS-C-2318 に準じて測定した。詳細は、フィルムの両面にアルミニウムを蒸着して径 50 mm の円形電極を作成し、加熱可能なオープン中で真鍮製の電極板の間に、蒸着サンプルを置き、リード線を介して加電圧し下記の条件でフィルムの絶縁抵抗を測定した。

オープン温度 : 125℃

加電圧 : 250 V

測定器 : 東亜電波工業 (株) 製超絶縁計「SM-8210」

測定した抵抗値 ( $A$ ) から絶縁抵抗 ( $I_R$ ) を次式から計算して求める。

$$\text{絶縁抵抗 } (\Omega \cdot \text{cm}) = 19.6 \times A / t$$

但し、式中の 19.6 は電極面積 (cm<sup>2</sup>)、 $A$  は読みとった抵抗値 ( $\Omega$ )、 $t$  はフィルム厚み (cm) である。

(6) 破断伸度

ASTM-D882 に規定された方法に従って、フィルムの長手方向について、インストロンタイプの引張試験機を用いて測定した。測定は下記の条件とした。

測定装置 : オリエンテック (株) 製フィルム強伸度自動測定装置  
「テンシロンAMF/RTA-100」

試料サイズ : 幅10mm×試長間100mm

引張速度 : 200mm/分

測定環境 : 温度23℃、湿度65%RH。

#### (7) 熱収縮率

JIS C2318に従って、フィルムの長手方向について、下記の条件にて測定した。

試料サイズ : 幅10mm、標線間隔200mm

測定条件1 : 温度150℃、処理時間30分、無荷重状態

収縮率は次式より求めた。

$$\text{熱収縮率 (\%)} = [(L_0 - L) / L_0] \times 100$$

$L_0$  : 加熱処理前の標線間隔

$L$  : 加熱処理後の標線間隔。

#### (8) 屈折率

屈折率は、JIS K7105に規定された方法に従って、ナトリウムD線を光源として、(株)アタゴ製のアッペ屈折率計4型を用いて測定した。なお、マウント液はヨウ化メチレンを用いて、23℃、65%RHにて測定した。

#### (9) 絶縁破壊電圧 (DC-BDV)

JIS-C-2110に規定された方法に準じて、125℃の条件で測定した。陰極には厚さ100μm、10cm角のアルミ箔電極、陽極には、径25mm、重さ500gの真鍮製の電極を用い、この間にフィルムを挟み、春日製高電圧直流電源を用いて100V/秒の速度で昇圧し、10mA以上流れたときに絶縁破壊したものと判断した。この測定を30回測定した値の平均値をフィルムの絶縁破壊電圧とした。

#### (10) フィルムコンデンサー特性

[コンデンサーの作成]

ポリエステルフィルムの片面に表面抵抗値が2Ω/cmとなるようにアルミニウムを真空蒸着した。その際、長手方向に走るマージン部を有するストライプ状

に蒸着する（蒸着部の幅 5.8 mm、マージン部の幅 2 mm の繰り返し）。次に、各蒸着部の中央と各マージン部の中央に刃を入れてスリットし、左もしくは右に 1 mm のマージンを有する全幅 30 mm のテープ状巻取りルルとした。

得られたルルの左マージンおよび右マージンのものを各 1 枚ずつ重ね合わせて巻回し、静電容量  $1.5 \mu\text{F}$  のコンデンサー素子とし、外装として別の  $12 \mu\text{m}$  の PET フィルムを外周に 3 周巻き付けた。このコンデンサー素子を  $130^\circ\text{C}$ 、 $30 \text{ kg}/\text{cm}^2$  の温度、圧力で 5 分間プレスした。この両端面にメタリコンを溶射して外部電極とし、メタリコンにリード線を溶接した。このコンデンサーに直流  $150 \text{ V}/\mu\text{m}$ （フィルム厚み換算）の電圧で 30 秒間の荷電処理を 1 回行い、さらに 2 本のリード線に印加する電極の正負を逆転させてもう 1 回行なう。作成したコンデンサーの静電容量が  $\pm 10\%$  以内であること、絶縁抵抗が  $10000 \text{ M}\Omega$  以上であることを確認し、この規格外を選別して評価用コンデンサーとした。

#### 〔コンデンサーの絶縁破壊電圧〕

上記コンデンサーを  $125^\circ\text{C}$  のオープン中で 24 時間放置後、電圧を  $100 \text{ V}/\text{秒}$  の昇圧速度で印加し、コンデンサーが絶縁破壊し、 $5 \text{ mA}$  以上の電流が流れた時点の電圧を絶縁破壊電圧とした。本発明では、30 個のコンデンサーの絶縁破壊電圧値の平均値を示す。なおコンデンサーの容量が大きく、充電電流のみで  $5 \text{ mA}$  以上の電流が流れる場合は、該電流値を充電電流と絶縁破壊電流を分離できる適切な値に設定する。

#### 〔コンデンサーの荷電寿命〕

30 個のコンデンサーを下記の条件下でオープン中に置き、各コンデンサーに破壊時に荷電電圧を停止するスイッチを装備し、直流電源発生器と並列に接続し電圧を印加し続けて、残存率が  $80\%$  以下（6 個破壊時）になる時間を荷電寿命とした。

（条件 1）温度： $125^\circ\text{C}$ 、電圧： $90 \text{ V}/\mu\text{m}$

（条件 2）温度： $150^\circ\text{C}$ 、電圧： $50 \text{ V}/\mu\text{m}$

#### 実施例



次に、本発明を実施例と比較例に基づいて説明する。

#### 実施例 1～9、比較例 1～2

テレフタル酸ジメチル 100 重量部、触媒として酢酸カルシウム 0.10 重量部を用いて、常法によりエステル交換反応を行ない、その生成物に三酸化アンチモン 0.03 重量部、トリメチルホスフェート 0.15 重量部、亜リン酸 0.02 重量部を添加し、常法に従って重縮合して固有粘度 0.65 のポリエチレンテレフタレート（PET）ペレットを得た。

次いで、ここで得た固有粘度 0.65 の PET 50 重量部とジーイープラスチック社製のポリエーテルイミド“ウルテム”1010 を 50 重量部を、150℃で 5 時間除湿乾燥した後、320～290℃に加熱された（スクリーゾーン、押出ヘッド部で温度勾配を設定）二軸 3 条タイプのスクリー（PET と PEI の混練可塑化ゾーン／ダルメージ混練ゾーン／逆ネジダルメージによる微分散相溶化ゾーン）を具備したベント式二軸押出機（L/D=40）に供給して、滞留時間 3 分にて熔融押出し、ウルテムを 50 重量％含有したブレンドチップを得た。ベント孔の真空度は 200 Pa とした。

次いで、得られたブレンドチップと前記の固有粘度 0.65 の PET チップ及び表 1 に示した無機粒子を 2 重量％含有したマスターチップ（前記 PET 重合工程で添加したもの）を表 1 に示した含有量（重量％）となるように混合し、180℃で 3 時間真空乾燥した後、押出機に投入し、280℃にて熔融押出し、繊維焼結ステンレス金属フィルター（8 μm カット）を通過させた後、T ダイからシート状に吐出し、該シートを表面温度 25℃の冷却ドラム上に静電印加法により密着固化させ冷却し、未延伸ポリエステルフィルムを得た。

続いて、この未延伸ポリエステルフィルムを、加熱された複数のロール群からなる縦延伸機を用い、長手方向に表 1 に示した条件で延伸した。引き続き、このフィルムの両端部をクリップで把持して、テンターに導き、表 1 に示した条件で幅方向に延伸を行ない、引き続き 235℃の温度で 3 秒間熱処理を行なった後、同温度で幅方向に 3％弛緩処理し、その後、150℃ゾーンでさらに幅方向に 2％弛緩処理を行なった後、室温まで徐冷し、厚さ 3.5 μm の二軸配向ポリエス

テルフィルムを得た。

得られたポリエステルフィルムの固有粘度、表面粗さ、厚み方向の屈折率を表 1 に、またフィルムのガラス転移温度、 $\tan \delta$  の立ち上がり温度、長手方向の破断伸度、長手方向の 150℃熱収縮率、125℃の絶縁抵抗、125℃の絶縁破壊電圧を表 2 に示す。

また、本発明のポリエステルフィルムの片面に表面抵抗値が  $2 \Omega / \text{cm}$  となるようにアルミニウムを真空蒸着し、本発明の耐熱性コンデンサー用金属化フィルムとした。さらに、この耐熱性コンデンサー用金属化フィルムを用いて耐熱性フィルムコンデンサーを作成し、その耐熱性フィルムコンデンサーの 125℃の絶縁破壊電圧、および荷電寿命時間を表 2 に示す。

本発明の耐熱性コンデンサー用ポリエステルフィルムは、ガラス転移温度および長手方向の破断伸度が本発明の範囲であるため、125℃の絶縁破壊電圧が高く、耐熱性に優れたポリエステルフィルムであった。また、本発明では、真空蒸着機を用いて、フィルムの片面にアルミニウムを蒸着して、耐熱性コンデンサー用金属化フィルムを作成したが、その際、フィルムの熱負けや熱伸びも無かった。得られた本発明の耐熱性コンデンサー用金属化フィルムを用いて作成した巻回型のフィルムコンデンサーは、125℃の絶縁破壊電圧が高く、125℃の荷電寿命時間も長く、耐熱性に優れていた。比較例 2 は、ポリエーテルイミド (PEI) の含有量が多いと、フィルムのガラス転移温度は高くなるが、フィルムの延伸性が劣り、結果的に絶縁破壊電圧が低くなり、荷電寿命も劣ることを示す例である。実施例 8, 9 では、フィルムの表面粗さが本発明の好ましい範囲外であるため、実施例 7 と比較して金属化フィルムを得る蒸着工程でフィルムの熱伸び、あるいは熱負けのトラブルが起こり易く、また作成したコンデンサーの荷電寿命もやや劣ったものであった。比較例 3, 4 は、フィルムの破断伸度が本発明の範囲外であるため、金属化フィルムを得る蒸着工程でフィルムの破断や伸びが生じたばかりでなく、作成したコンデンサーの荷電寿命が実施例 2 と比較して大幅に劣ったものであった。

#### 実施例 10

実施例 1 の P E I と P E T とのブレンドチップ作成に用いた P E T チップを 180℃の温度で熱結晶化処理した後、温度 230℃、真空度 100 Pa の条件で 14 時間処理（固相重合）して、固有粘度を 0.85 とした P E T チップを作成した。この P E T チップを使用して P E I とのブレンドチップを作成し、表 1 に示した延伸条件とした以外は、実施例 3 に準じて製膜して、厚さ 3.5 μm の二軸配向ポリエステルフィルムを得た。評価した結果は、表 1、2 に示すとおりである。ガラス転移温度は実施例 3 に近いものであったが、125℃の絶縁破壊電圧が優れたものであり、さらに実施例 3 のコンデンサーと比較して、荷電寿命に優れたものであった。

#### 実施例 11、比較例 5～7

ナフタレン-2,6-ジカルボン酸ジメチルおよびエチレングリコールを酢酸マンガンの存在下、常法によりエステル交換せしめた後、トリメチルホスフェートを添加した。このとき、マンガンおよびリンのモル数は共に 45 ppm になるように添加量を調節した。次いで、三酸化アンチモン 0.02 重量%を添加して、常法により重縮合させて、固有粘度 0.62、のポリエチレン-2,6-ナフタレート（PEN）を得た（融解温度 263℃）。

次いで、ここで得た固有粘度 0.62 の PEN 50 重量部とジーイープラス社製のポリエーテルイミド“ウルテム”1010 を 50 重量部を、150℃で 5 時間除湿乾燥した後、330～300℃に加熱された（スクリーゾーン、押出ヘッド部で温度勾配を設定）二軸 3 乗タイプのスクリー（PEN と P E I の混練可塑化ゾーン／ダルメージ混練ゾーン／逆ネジダルメージによる微分散相溶化ゾーン）を具備したベント式二軸押出機（L/D=40）に供給して、滞留時間 2 分にて熔融押出し、ウルテムを 50 重量%含有したブレンドチップを得た。この際、ベント孔の真空度は 200 Pa とした。

次いで、得られたブレンドチップと前記の固有粘度 0.62 の PEN チップ及び表 1 に示した無機粒子を 2 重量%含有したマスターチップ（前記 PEN 重合工程で添加したもの）を表 1 に示した含有量（重量%）となるように混合し、160℃で 1 時間、その後 180℃で 3 時間真空乾燥した後、押出機に投入し、29

0℃にて熔融押出し、繊維焼結ステンレス金属フィルター（8  $\mu$ mカット）を通過させた後、Tダイからシート状に吐出し、該シートを表面温度25℃の冷却ドラム上に静電印加法により密着固化させ冷却し、未延伸PENフィルムを得た。

続いて、この未延伸フィルムを、加熱された複数のロール群からなる縦延伸機を用い、ロールの周速差を利用して、表1に示した条件で延伸した。その後、このフィルムの両端部をクリップで把持して、テンターに導き、表1に示した条件でフィルムの幅方向に延伸を行い、引き続いて235℃の温度で3秒間熱処理を行った後、同温度で幅方向に3%弛緩処理し、その後、150℃ゾーンでさらに幅方向に2%弛緩処理を行なった後、室温まで徐冷し、厚さ3.5  $\mu$ mの二軸配向ポリエステルフィルムを得た。

得られたポリエステルフィルムの固有粘度、表面粗さ、厚み方向の屈折率を表1に、またフィルムのガラス転移温度、 $\tan \delta$ の立ち上がり温度、長手方向の破断伸度、長手方向の150℃熱収縮率、125℃の絶縁抵抗、125℃の絶縁破壊電圧を表2に示す。

また、本発明のポリエステルフィルムの片面に表面抵抗値が2  $\Omega$ /cmとなるようにアルミニウムを真空蒸着し、本発明の耐熱性コンデンサー用金属化フィルムとした。さらに、この耐熱性コンデンサー用金属化フィルムを用いて耐熱性フィルムコンデンサーを作成した。その耐熱性フィルムコンデンサーの125℃の絶縁破壊電圧、および荷電寿命時間を表2に示す。

実施例11の耐熱性コンデンサー用ポリエステルフィルムは、PEN単独からなる比較例5のフィルムよりも、ガラス転移温度が高く、荷電寿命が長い、耐熱性に優れたポリエステルフィルムであった。比較例6、7のフィルムは、破断伸度が本発明の範囲から外れるため、金属化フィルムを得る蒸着工程でフィルムの破断、熱負けが生じやすく、得られたコンデンサーの荷電寿命も実施例11のフィルムと比較して大幅に低下した。

#### 実施例12、13

本実施例ではウルテム以外の下記ポリイミドA、Bを使用して作成した二軸配向ポリエステルフィルムの例を示す。

## (1) ポリイミドA

イソホロンジイソシアネート200gを窒素雰囲気下でN-メチル-2-ピロリドン(NMP)3000ml中に添加し攪拌する。次いで、この溶液に無水ピロメリット酸196gを室温で添加した後、徐々に昇温する。その後、180℃で6時間加熱すると、二酸化炭素の発生が終了したので加熱を止めた。このポリマー溶液を水中に展開して洗浄した後、ここで得られたポリマーを乾燥した。

## (2) ポリイミドB

窒素気流下にて、ビフェニルテトラカルボン酸二無水物147g(0.5mol)をN-メチル-2-ピロリドン300gに投入した。この溶液に、トランス-1,4-ジアミノシクロヘキサン57g(0.5mol)をNMP17.6gに溶解したものを滴下し、室温で2時間、さらに50℃で4時間攪拌しポリアミド酸溶液を得た。この溶液を冷却後、水500mlに投入し、ポリマーを析出させた。析出したポリマーを濾取し、窒素中、250℃で2時間熱処理し、目的のポリイミドを得た。

ここで得たポリイミドA、Bをウルテムの代わりに使用する以外は実施例2と同様の方法で製膜し、厚さ3.5μmの二軸配向ポリエステルフィルムを得た。実施例12はポリイミドAを10重量%添加したフィルムであり、実施例13はポリイミドBを10重量%添加したフィルムである。

ここで得られた二軸配向フィルムの固有粘度、表面粗さ、厚み方向の屈折率を表1に、またフィルムのガラス転移温度、 $\tan \delta$ の立ち上がり温度、長手方向の破断伸度、長手方向の150℃熱収縮率、125℃の絶縁抵抗、125℃の絶縁破壊電圧を表2に示す。

また、実施例2と同様の方法で耐熱性コンデンサー用金属化フィルムおよび耐熱性フィルムコンデンサーを作成した。その耐熱性フィルムコンデンサーの125℃の絶縁破壊電圧、および荷電寿命時間を表2に示す。

ウルテム以外のポリイミドを使用して作成した本実施例のフィルムは、ガラス転移温度および破断伸度が本発明で開示する範囲にあり、これらのフィルムを用いると、高い絶縁破壊電圧と優れた荷電寿命を有し、耐熱性に優れたフィルムコンデンサーが得られた。

表 1

	添加組成 (wt %)				長手方向延伸		幅方向延伸		固有粘度 (dl/g)	表面粗さ (Ra) (nm)	厚さ方向 の屈折率 (-)
	ポリ イミド	粒子 1	粒子 2	粒子 3	温度 (°C)	倍率 (倍)	温度 (°C)	倍率 (倍)			
比較例 1	0	0.3	0.1	0	90	3.5	95	3.6	0.60	48	1.485
実施例 1	5	0.3	0.1	0	95	3.6	100	3.7	0.61	50	1.496
実施例 2	10	0.3	0.1	0	100	3.6	105	3.7	0.62	51	1.505
実施例 3	15	0.3	0.1	0	100	3.6	105	3.7	0.62	53	1.516
実施例 4	20	0.3	0.1	0	105	3.6	110	3.8	0.62	55	1.525
実施例 5	30	0.3	0.1	0	105	3.5	110	3.6	0.62	56	1.535
比較例 2	40	0.3	0.1	0	120	3.0	125	3.5	0.62	59	1.545
実施例 6	15	0	0.1	0	100	3.6	105	3.7	0.62	46	1.512
実施例 7	15	0.3	0.2	0	100	3.6	105	3.7	0.62	85	1.516
実施例 8	15	0.2	0	0	100	3.6	105	3.7	0.62	8	1.516
実施例 9	15	0	0.1	0.1	100	3.6	105	3.7	0.62	145	1.518
実施例 10	15	0.3	0.1	0	105	3.7	110	3.8	0.65	50	1.512
比較例 3	10	0.3	0.1	0	110	3.8	105	4.2	0.62	48	1.497
比較例 4	10	0.3	0.1	0	100	2.6	105	2.7	0.62	55	1.525
実施例 11	10	0.3	0.1	0	140	3.8	145	3.9	0.61	47	1.490
比較例 5	0	0.3	0.1	0	135	3.8	135	4.3	0.60	51	1.478
比較例 6	10	0.3	0.1	0	140	4.2	145	4.5	0.61	46	1.482
比較例 7	10	0.3	0.1	0	140	3.2	145	3.8	0.61	50	1.510
実施例 12	10	0.3	0.1	0	105	3.6	110	3.7	0.60	53	1.507
実施例 13	10	0.3	0.1	0	105	3.6	110	3.7	0.60	54	1.502

表 2

	フ ル ム 特 性						コンデンサー特性 (厚み=3.5 $\mu$ m品)	
	ガラス転移 温度 ( $^{\circ}$ C)	$\tan \delta$ 立ち 上がり温度 ( $^{\circ}$ C)	絶縁体積抵抗 ( $\Omega \cdot \text{cm}$ )	破断伸度 (%)	熱収縮率 (%)	絶縁破壊電圧 (V/ $\mu$ m)	125 $^{\circ}$ C絶縁 破壊電圧 (KV)	125 $^{\circ}$ C 荷電寿命 (時間)
比較例 1	103	82	$6 \times 10^{13}$	115	1.9	360	0.51	420
実施例 1	121	89	$9 \times 10^{14}$	119	1.3	410	0.78	950
実施例 2	128	95	$2 \times 10^{15}$	113	1.2	420	0.81	1250
実施例 3	130	97	$4 \times 10^{15}$	110	1.2	430	0.84	1450
実施例 4	135	98	$5 \times 10^{15}$	106	1.1	435	0.83	1350
実施例 5	138	100	$1 \times 10^{16}$	95	1.0	420	0.75	1250
比較例 2	149	94	$3 \times 10^{16}$	75	0.6	380	0.70	650
実施例 6	131	97	$4 \times 10^{15}$	113	1.2	425	0.83	1250
実施例 7	130	96	$4 \times 10^{15}$	110	1.1	420	0.81	1350
実施例 8	130	96	$4 \times 10^{15}$	112	1.1	415	0.61	850
実施例 9	131	97	$3 \times 10^{15}$	106	1.2	390	0.58	750
実施例 10	129	97	$5 \times 10^{15}$	117	1.2	455	0.89	1630
比較例 3	129	97	$3 \times 10^{15}$	63	1.7	450	0.73	250
比較例 4	125	94	$1 \times 10^{15}$	153	0.9	340	0.58	200
実施例 11	135	106	$3 \times 10^{15}$	83	0.1	380	0.53	600
比較例 5	129	101	$1 \times 10^{15}$	82	0.2	320	0.42	330
比較例 6	136	108	$3 \times 10^{15}$	65	0.3	390	0.54	310
比較例 7	133	105	$2 \times 10^{15}$	155	0.1	280	0.43	190
実施例 12	132	97	$2 \times 10^{15}$	95	0.9	410	0.72	850
実施例 13	134	97	$2 \times 10^{15}$	90	0.8	430	0.75	800

PEI = ポリエーテルイミド

粒子 1 = 乾式シリカ、平均粒径; 0.4  $\mu$ m粒子 2 = 湿式シリカ、平均粒径; 1.1  $\mu$ m粒子 3 = 湿式シリカ、平均粒径; 2.1  $\mu$ m

## 実施例 1 4

本実施例では、前記実施例 2、3、11 および比較例 1、3、6 について、150℃での荷電寿命について調べた結果を示す。

評価結果を表 3 に示す。前記 125℃での寿命試験と比較して、電位傾度を下げたため、実施例のフィルムは 2000 時間以上の間、全く破壊が生じなかった。一方、ガラス転移温度または／および長手方向の破断伸度が本願で開示する範囲から外れている比較例のフィルムは早期に破壊が生じた。

表 3

	150℃ 荷電寿命 (時間)
実施例 2	2 2 0 0
実施例 3	3 0 0 0
実施例 11	1 4 0 0
比較例 1	4 5 0
比較例 3	4 4 0
比較例 5	3 0 0

## 産業上の利用可能性

本発明によれば、フィルムのガラス転移温度が高く、高温下での絶縁破壊電圧が向上し、耐熱性に優れたコンデンサー用ポリエステルフィルムが得られる。また、本コンデンサー用ポリエステルフィルムは、金属化フィルムとなし、この耐熱性コンデンサー用金属化フィルムを用いたフィルムコンデンサーは、高温下での絶縁破壊電圧に優れ、かつ荷電寿命にも優れたものとなり、コンデンサー分野に広く活用可能であり、その工業的価値は極めて高い。



27  
請求の範囲

1. ポリエステル(A)を主成分とする二軸配向フィルムであって、該フィルム中にポリイミド(B)を含有し、ガラス転移温度が105℃以上、145℃以下であり、該フィルムの長手方向の破断伸度が70%以上、150%以下である耐熱コンデンサー用ポリエステルフィルム。
2. 表面粗さ(Ra)が10nm以上、140nm以下であることを特徴とする請求の範囲第1項記載の耐熱コンデンサー用ポリエステルフィルム。
3. ポリエステル(A)がエチレンテレフタレートの主成分とするポリエステルであることを特徴とする請求の範囲第1項記載の耐熱コンデンサー用ポリエステルフィルム。
4. ポリイミド(B)がポリエーテルイミドであることを特徴とする請求の範囲第1項記載の耐熱コンデンサー用ポリエステルフィルム。
5. 誘電損失( $\tan \delta$ )の立ち上がり温度が85℃以上、120℃以下であることを特徴とする請求の範囲第1項記載の耐熱コンデンサー用ポリエステルフィルム。
6. 二軸配向ポリエステルフィルムの125℃における絶縁体積抵抗(IR)が $1.0 \times 10^{14} \Omega \cdot \text{cm}$ 以上、 $5.0 \times 10^{16} \Omega \cdot \text{cm}$ 以下である請求の範囲第1項記載の耐熱性コンデンサー用ポリエステルフィルム。
7. ポリイミド(B)の含有率が二軸配向ポリエステルフィルムの全重量の5～30重量%である請求の範囲第1項記載の耐熱性コンデンサー用ポリエステルフィルム。
8. 150℃、30分における二軸配向ポリエステルフィルムの長手方向の熱収縮率が2.5%以下である請求の範囲第1項記載の耐熱性コンデンサー用ポリエステルフィルム。
9. 請求の範囲第1～8項記載のいずれかに記載の耐熱性コンデンサー用ポリエステルフィルムの少なくとも片面に金属層を形成してなることを特徴とする耐熱性コンデンサー用金属化フィルム。
10. 請求の範囲第9項に記載の耐熱性コンデンサー用金属化フィルムを用いて

なることを特徴とする耐熱性フィルムコンデンサー。

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/01012

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
Int.Cl.<sup>7</sup> H01G4/20, C08J5/18

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.<sup>7</sup> H01G4/00-4/40, C08J5/18

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2001  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2001 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2001

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP, 5-124100, A (Toray Industries, Inc.), 21 May, 1993 (21.05.93) (Family: none)	1-10

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search  
08 May, 2001 (08.05.01)

Date of mailing of the international search report  
15 May, 2001 (15.05.01)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. H01G4/20, C08J5/18

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. H01G4/00-4/40, C08J5/18

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2001年
日本国登録実用新案公報	1994-2001年
日本国実用新案登録公報	1996-2001年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	J P. 5-124100, A (東レ株式会社), 21. 5月. 1993 (21. 05. 93) (ファミリーなし)	1-10

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

08. 05. 01

国際調査報告の発送日

15.05.01

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

竹井 文雄

印

5 R

7922

電話番号 03-3581-1101 内線 3563

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



## 特許協力条約に基づく国際出願願書

原本(出願用) - 印刷日時 2001年02月06日 (06.02.2001) 火曜日 10時37分57秒

00088

0	受理官庁記入欄 国際出願番号.	
0-1		
0-2	国際出願日	
0-3	(受付印)	
0-4	様式-PCT/RO/101 この特許協力条約に基づく国際出願願書は、 右記によって作成された。	PCT 14.2.01 受領印
0-4-1		PCT-EASY Version 2.91 (updated 01.01.2001)
0-5	申立て 出願人は、この国際出願が特許協力条約に従って処理されることを請求する。	
0-6	出願人によって指定された受理官庁	日本国特許庁 (RO/JP)
0-7	出願人又は代理人の書類記号	00088
I	発明の名称	耐熱性コンデンサー用ポリエステルフィルム、その 金属化フィルムおよびそれを用いた耐熱性フィルム コンデンサー
II	出願人	
II-1	この欄に記載した者は	出願人である (applicant only)
II-2	右の指定国についての出願人である。	米国を除くすべての指定国 (all designated States except US)
II-4ja	名称	東レ株式会社
II-4en	Name	TORAY INDUSTRIES, INC.
II-5ja	あて名:	103-8666 日本国 東京都 中央区 日本橋室町2丁目2番1号
II-5en	Address:	2-1, Nihonbashi-Muromachi 2-chome, Chuo-ku,, Tokyo 103-8666 Japan
II-6	国籍(国名)	日本国 JP
II-7	住所(国名)	日本国 JP
II-8	電話番号	03-3245-5648
II-9	ファクシミリ番号	0473-50-6062

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



## 特許協力条約に基づく国際出願願書

原本(出願用) - 印刷日時 2001年02月06日 (06.02.2001) 火曜日 10時37分57秒

00088

III-1	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は	出願人及び発明者である (applicant and inventor)
III-1-1	この欄に記載した者は	出願人及び発明者である (applicant and inventor)
III-1-2	右の指定国についての出願人である。	米国のみ (US only)
III-1-4ja	氏名(姓名)	恒川 哲也
III-1-4en	Name (LAST, First)	TSUNEKAWA, Tetsuya
III-1-5ja	あて名:	520-2134 日本国 滋賀県 大津市 瀬田5丁目33-9
III-1-5en	Address:	33-9, Seta 5-chome Otsu-shi, Shiga 520-2134 Japan
III-1-6	国籍(国名)	日本国 JP
III-1-7	住所(国名)	日本国 JP
III-2	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は	出願人及び発明者である (applicant and inventor)
III-2-1	この欄に記載した者は	出願人及び発明者である (applicant and inventor)
III-2-2	右の指定国についての出願人である。	米国のみ (US only)
III-2-4ja	氏名(姓名)	朝倉 正芳
III-2-4en	Name (LAST, First)	ASAKURA, Masayoshi
III-2-5ja	あて名:	525-0052 日本国 滋賀県 草津市 西矢倉3丁目16-14
III-2-5en	Address:	16-14, Nishiyakura 3-chome, kusatsu-shi, Shiga 525-0052 Japan
III-2-6	国籍(国名)	日本国 JP
III-2-7	住所(国名)	日本国 JP
III-3	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は	出願人及び発明者である (applicant and inventor)
III-3-1	この欄に記載した者は	出願人及び発明者である (applicant and inventor)
III-3-2	右の指定国についての出願人である。	米国のみ (US only)
III-3-4ja	氏名(姓名)	山形 哲也
III-3-4en	Name (LAST, First)	YAMAGATA, Tetsuya
III-3-5ja	あて名:	411-0033 日本国 静岡県 三島市 文教町2-26-33 東レ上岩崎アパート3棟14号室
III-3-5en	Address:	3-14, Toray-kamiwasaki apartment, 2-26-33, Bunkyo-cho, Mishima-shi, Shizuoka 411-0033 Japan
III-3-6	国籍(国名)	日本国 JP
III-3-7	住所(国名)	日本国 JP

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## 特許協力条約に基づく国際出願願書

原本（出願用） - 印刷日時 2001年02月06日（06.02.2001）火曜日 10時37分57秒

00088


IV-1	代理人又は共通の代表者、通知のあて名 下記の者は国際機関において右記のごとく出願人のために行動する。	代理人 (agent)
IV-1-1ja	氏名(姓名)	岩見 知典
IV-1-1en	Name (LAST, First)	IWAMI, Tomonori
IV-1-2ja	あて名:	279-8555 日本国 千葉県 浦安市 美浜1丁目8番1号 東レ株式会社知的財産部内
IV-1-2en	Address:	c/o Intellectual Property Department, TORAY INDUSTRIES, INC. 8-1, Mihama 1-chome, Urayasu-shi, Chiba 279-8555 Japan
IV-1-3	電話番号	047-350-6015
IV-1-4	ファクシミリ番号	047-350-6062
IV-1-5	電子メール	Tomonori iwami@nts.toray.co.jp
V	国の指定	
V-1	広域特許 (他の種類の保護又は取扱いを求める場合には括弧内に記載する。)	EP: AT BE CH&LI CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LU MC NL PT SE 及びヨーロッパ特許条約と特許協力条約の締約国 である他の国 (ただし、以下の国を除く: TR)
V-2	国内特許 (他の種類の保護又は取扱いを求める場合には括弧内に記載する。)	CN ID KR US
V-5	指定の確認の宣言 出願人は、上記の指定に加えて、規則4.9(b)の規定に基づき、特許協力条約のもとで認められる他の全ての国の指定を行う。ただし、V-6欄に示した国の指定を除く。出願人は、これらの追加される指定が確認を条件としていること、並びに優先日から15月が経過する前にその確認がなされない指定は、この期間の経過時に、出願人によって取り下げられたものとみなされることを宣言する。	
V-6	指定の確認から除かれる国	なし (NONE)
VI-1	先の国内出願に基づく優先権主張	
VI-1-1	先の出願日	2000年02月28日 (28.02.2000)
VI-1-2	先の出願番号	特願2000-050811
VI-1-3	国名	日本国 JP
VI-2	優先権証明書送付の請求 上記の先の出願のうち、右記の番号のものについては、出願書類の認証謄本を作成し国際事務局へ送付することを、受理官庁に対して請求している。	VI-1
VII-1	特定された国際調査機関 (ISA)	日本国特許庁 (ISA/JP)

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## 特許協力条約に基づく国際出願願書

原本（出願用） - 印刷日時 2001年02月06日（06.02.2001）火曜日 10時37分57秒

00088

VIII		用紙の枚数	添付された電子データ
VIII-1	願書	4	-
VIII-2	明細書	26	-
VIII-3	請求の範囲	2	-
VIII-4	要約	1	00088.txt
VIII-5	図面	0	-
VIII-7	合計	33	
添付書類		添付	添付された電子データ
VIII-8	手数料計算用紙	✓	-
VIII-9	別個の記名押印された委任状	✓	-
VIII-16	PCT-EASYディスク	-	フレキシブルディスク
VIII-17	その他	納付する手数料に相当する特許印紙を貼付した書面	-
VIII-17	その他	国際事務局の口座への振込を証明する書面	-
VIII-18	要約書とともに提示する図の番号		
VIII-19	国際出願の使用言語名:	日本語 (Japanese)	
IX-1	提出者の記名押印		
IX-1-1	氏名(姓名)		

## 受理官庁記入欄

10-1	国際出願として提出された書類の実際の受理の日	
10-2	図面:	
10-2-1	受理された	
10-2-2	不足図面がある	
10-3	国際出願として提出された書類を補完する書類又は図面であってその後期間内に提出されたものの実際の受理の日（訂正日）	
10-4	特許協力条約第11条(2)に基づく必要な補完の期間内の受理の日	
10-5	出願人により特定された国際調査機関	ISA/JP
10-6	調査手数料未払いにつき、国際調査機関に調査用写しを送付していない	

## 国際事務局記入欄

11-1	記録原本の受理の日	
------	-----------	--

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## PATENT COOPERATION TREATY



PCT

NOTIFICATION OF RECEIPT OF  
RECORD COPY

(PCT Rule 24.2(a))

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

IWAMI, Tomonori  
c/o Intellectual Property  
Department  
TORAY INDUSTRIES, INC.  
8-1, Mihama 1-chome  
Urayasu-shi, Chiba 279-8555  
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 20 March 2001 (20.03.01)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference 00088	International application No. PCT/JP01/01012

The applicant is hereby notified that the International Bureau has received the record copy of the international application as detailed below.

Name(s) of the applicant(s) and State(s) for which they are applicants:

TORAY INDUSTRIES, INC. (for all designated States except US)  
TSUNEKAWA, Tetsuya et al (for US)

International filing date : 14 February 2001 (14.02.01)  
Priority date(s) claimed : 28 February 2000 (28.02.00)  
Date of receipt of the record copy  
by the International Bureau : 02 March 2001 (02.03.01)  
List of designated Offices :

EP : AT,BE,CH,CY,DE,DK,ES,FI,FR,GB,GR,IE,IT,LU,MC,NL,PT,SE  
National : CN,ID,KR,US


## ATTENTION

The applicant should carefully check the data appearing in this Notification. In case of any discrepancy between these data and the indications in the international application, the applicant should immediately inform the International Bureau.

In addition, the applicant's attention is drawn to the information contained in the Annex, relating to:

- ☒ time limits for entry into the national phase
- ☒ confirmation of precautionary designations
- ☒ requirements regarding priority documents

A copy of this Notification is being sent to the receiving Office and to the International Searching Authority.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer:  Y. KUWAHARA 
Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Telephone No. (41-22) 338.83.38

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**